

氏 名	ふじ 藤 沢 浩 訓
学位の種類	博 士 (工 学)
学位記番号	論工博第 3766 号
学位授与の日付	平成 16 年 1 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 2 項該当
学位論文題目	MOCVD法により作製した強誘電体Pb(Zr, Ti)O ₃ 薄膜及びナノ構造の物性に関する研究

論文調査委員 (主査) 教授 松重和美 教授 鈴木 実 教授 高岡義寛

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、不揮発性強誘電体メモリの超高集積化に向けて克服すべき問題となるサイズ効果や臨界サイズ、微視的現象の理解を目的として、有機金属気相堆積 (MOCVD) 法で作製したPb (Zr, Ti) O₃ (PZT) 薄膜及びナノ構造物の物性に関する研究の成果をまとめたものであって、6章からなっている。

第1章は序論であり、不揮発性強誘電体メモリの特徴と実用化の現状について述べた後に、将来の超高集積化に向けて克服すべき強誘電体薄膜の問題点とその現状について整理し、本研究の目的と位置づけを明らかにするとともに、本論文の骨子をまとめている。

第2章においては、試料の作製方法と評価方法について述べている。

第3章では、強誘電体薄膜のサイズ効果について3種類のエピタキシャル及び多結晶PZT薄膜の格子定数や電気的特性の膜厚依存性を比較することにより考察している。X線回折法による格子定数及び結晶構造の膜厚依存性の測定結果から、エピタキシャル薄膜では下地板や電極材料と強誘電体の格子定数及び熱膨張係数の不整合に基づく応力により結晶格子が変形しているのに対し、多結晶膜では基板からの拘束が弱いためにバルクとほぼ同じ格子定数をもつことを実験的に示している。一方、電気的特性の膜厚依存性が電極/強誘電体界面及びグレインバウンダリ近傍の内部電界による低誘電率層に起因するモデルにより説明可能であることを示すとともに、界面層の厚みが30-40nmであることを明らかにしている。さらにこれらの外因的な要素 (応力、低誘電率層など) による影響が、比較的大きな膜厚やグレインサイズ (~50nm) から現れるために、強誘電体薄膜では膜厚やグレインサイズのみによる純粋なサイズ効果の観測は困難であることを説明している。

第4章では、MOCVD法における自己集合化現象を利用して作製したPbTiO₃及びPZTナノ構造における臨界サイズとそれを決定する要因を、X線回折法及び透過型電子顕微鏡 (TEM)、走査型プローブ顕微鏡 (SPM) を用いて実験的に明らかにしている。Pt/SiO₂/Si基板上に作製したPbTiO₃ナノ構造の臨界サイズは、幅32nm及び高さ11nm (体積: ~4000nm³) であり、微粒子 (粒径: 10nm) や現象論による計算値 (体積: ~1000nm³) よりも数倍大きいことを実験的に明らかにするとともに、この臨界サイズが主に基板からの応力によって決定されていることを説明している。

第5章では、走査型プローブ顕微鏡を用いたリークパスと分極反転過程の観察について述べている。導電性探針を用いたAFMにより多結晶PZT薄膜では、グレインバウンダリがリークパスとなりうることを明らかにしている。さらに、TEM及び付属の蛍光X線分析装置による構造・組成の微視的観察から、グレインバウンダリ近傍の微細構造や組成の不均一がリークパスの原因であることを示している。また、圧電応答顕微鏡 (PFM) により、PZT薄膜の分極反転過程ではグレインバウンダリによってドメイン成長が妨げられていること、及び分極反転速度の電界依存性が縦及び横方向のドメインの成長速度の電界依存性に起因していることを実験的に明らかにしている。さらに、単結晶に比べてドメインの成長速度が2桁遅く、潜在的に分極反転が開始しやすい場所 (潜在核) が2桁多いことを見出している。

第6章は結論であり、本論文で新たに得られた学術的知見及び工学的成果について要約している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、不揮発性強誘電体メモリの超高集積化に向けて克服すべき問題となるサイズ効果や臨界サイズ、及び微視的現象の理解を目的として、有機金属気相堆積 (MOCVD) 法で作製したPb (Zr, Ti) O₃ (PZT) 薄膜及びナノ構造物の物性に関する研究の成果をまとめたものであり、得られた主な成果は以下のとおりである。

1. 強誘電体PbTiO₃及びPZT薄膜のサイズ効果に関して、下地基板と電極材料との格子定数及び熱膨張係数の不整合による応力が結晶構造の異方性を決定していること、及び界面の低誘電率層が電気的特性に大きな影響を及ぼしていることを示した。同時にこれらの外的要因がより大きなサイズから現れるため、本質的なサイズ効果の観察は困難であることを明らかにした。
2. MOCVD法における自己集合化現象を利用して作製した強誘電体PbTiO₃及びPZTナノ構造 (幅及び高さ: 100nm以下) において強誘電性の現れる臨界サイズを調べ、それが微粒子の臨界サイズや現象論による計算値よりも数倍大きく、幅32nm及び高さ11nmであることを明らかにした。さらに、臨界サイズが主に基板からの応力によって決まっていることを明らかにした。
3. PZT薄膜のリークパスと分極反転過程について、走査型プローブ顕微鏡による微視的観察を行い、多結晶PZT薄膜では下部電極や強誘電体薄膜の微細構造及び界面・表面の平坦性が深く関与し、組成の均一性が低い場合には、グレインバウンダリがリークパスとなりうることや、ドメイン成長を阻害していることを明らかにした。また、強誘電体キャパシタの分極反転を記述するパラメータの電界依存性が、主として縦・横方向のドメインの成長速度の電界依存性に起因していることを示した。さらに、ドメインの縦方向の成長速度がバルク単結晶の場合よりも非常に遅いこと、及び潜在核が非常に多量に存在することを見出し、強誘電体薄膜の分極反転過程が単結晶のそれとは大きく異なることを明らかにした。

以上、本論文は強誘電体メモリの微小化の極限と分極反転過程での微視的挙動を明らかにすることにより、強誘電体薄膜のナノレベルでの物性解明とデバイス応用への指針を与えたものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認める。また、平成15年11月6日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。